

(12) INTERNATIONAL APPLICATION PUBLISHED ACCORDING TO THE PATENT COOPERATION  
TREATY (PCT)

(19) World Organization for Intellectual Property  
International Office

[Logo]

[Bar Code]

(43) International Publication Date  
April 5, 2001 (4/5/2001)

PCT

(10) International Publication No.  
WO 01/24203 A1

- 
- |  |   |
|--|---|
| (51) International patent classification7: H01F 1/057  | (72) Inventor(s); and   |
| (21) International File No.: PCT/EP00/09128  | (75) Inventor/applicant ( <i>for US only</i> ):   |
| (22) International application date:<br>September 18, 2000 (9/18/2000)   | KATTER, Matthias, [DE/DE]; Am<br>Bachgraben 8, 63755 Alzenau (Germany),<br>FERNENGEL, Wilhelm [DE/DE];<br>Essener Strasse 5, 63801 Kleinostheim<br>(Germany). |
| (25) Language of application: German   | (74) Agent: WESTPHAL, MUSSGNUG &<br>PARTNER; Mozartstrasse 8,<br>80336 Munich (Germany).  |
| (26) Language of publication: German   | (81) Destination countries ( <i>national</i> ): JP,US.  |
| (30) Priority information:<br>199 45 942.8 September 24, 1999 (9/24/1999) DE   | (84) Destination countries ( <i>regional</i> ):<br>European patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES,<br>FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).               |
| (71) Applicant ( <i>for all destination countries except<br/>US</i> ): VACUUMSCHMELZE GMBH [DE/DE]:<br>Grüner Weg 37, 63450 Hanau (Germany). | Published:<br>- <i>With international search report.</i><br>[Continued on next page]  |
- 

[Bar Code]

(54) Title: BORON-LOW Nd-Fe-B ALLOY AND METHOD FOR PRODUCING PERMANENT MAGNETS ON  
THE BASIS OF SAID ALLOY

[see source for graphic]

(57) Abstract: The invention relates to boron-low Nd-Fe-B permanent magnets that have high coercive forces. To this end, the concentrations have to meet the following requirements:  $26.9 \text{ wt.-%} \leq [\text{SE}]_{\text{eff}} \leq 33 \text{ wt.-%}$ ;  $2.185 - 0.0442 [\text{SE}]_{\text{eff}} \leq [\text{B}]_{\text{eff}} \leq 1.363 - 1.0136 [\text{SE}]_{\text{eff}}$ ;  $[\text{Dy} + \text{Tb} + \text{Ho}] \leq 50 \text{ wt.-%}$ ;  $0.5 \text{ wt.-%} \leq [\text{Co}] \leq 5 \text{ wt.-%}$ ;  $0.05 \text{ wt.-%} \leq [\text{Cu}] \leq 0.3 \text{ wt.-%}$ ;  $0.05 \text{ wt.-%} \leq [\text{Ga}] \leq 0.35 \text{ wt.-%}$ ;  $0.02 \text{ wt.-%} \leq [\text{Al}] \leq 0.3 \text{ wt.-%}$ .

WO 01/24203 A1



---

*For an explanation of the two-letter codes, and other abbreviations, please refer to the explanations ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") at the top of each regular issue of the PCT-Gazette.*



## Beschreibung

Borarme Nd-Fe-B-Legierung und Verfahren zur Herstellung von Dauermagneten aus dieser Legierung

5

Die Erfindung betrifft eine Legierung auf der Basis von wenigstens einer Seltenen Erde, wenigstens einem Übergangsmetall und Bor sowie ein Verfahren zur Herstellung von Dauermagneten aus dieser Legierung.

10

Derartige Legierungen und Verfahren zur Herstellung von Dauermagneten aus dieser Legierung sind aus der EP-A-0 124 655 bekannt. In dem bekannten Verfahren wird zunächst eine Legierung auf der Basis von Neodym, Eisen und Bor erschmolzen. Die Legierung wird zu einem Schmelzblock abgegossen, der anschließend zu Pulver zerkleinert wird. Aus dem Pulver werden im Magnetfeld Rohlinge gepreßt, die schließlich gesintert werden.

20 Für viele Anwendungen von Nd-Fe-B-Dauermagneten, insbesondere in Motoren und Antrieben aller Art, ist die Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  bei 150°C entscheidend für die Qualität des Dauermagneten. Bei geringer Gegenfelddbelastung muß die Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  bei 150°C mindestens 4,5 kOe, besser mehr als 25 5 kOe betragen. Bei hoher Gegenfelddbelastung sind sogar Werte oberhalb von 13 kOe bei 150°C gefordert. Neben der hohen Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  sollen solche Magnete auch eine möglichst hohe Remanenz  $B_r$  aufweisen. Beispielsweise soll die Remanenz  $B_r$  von Nd-Fe-B-Dauermagneten, die bei 150°C eine Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  im Bereich von 4,5 kOe aufweisen, bei 30 Raumtemperatur mindestens 1,29 T, besser jedoch mehr als 1,35 T betragen.

35 Für Motoranwendungen ist außerdem gefordert, daß der reversible Temperaturkoeffizient der Remanenz  $TK(B_r)$  im Temperaturbereich von 20°C bis 150°C besser als -0,11 %/K sein soll. Zusätzlich sollen derartige Dauermagnete eine möglichst gute

Korrosionsbeständigkeit aufweisen, um aufwendige und teure Beschichtungen überflüssig zu machen. So wird zum Beispiel gefordert, daß der Masseverlust von unbeschichteten Magneten im sogenannten HAST-Test nach zehn Tagen kleiner als  $1 \text{ mg/cm}^2$  sein soll. Im HAST-Test werden die Dauermagnete bei einer Temperatur von  $130^\circ\text{C}$  und einer relativen Luftfeuchtigkeit von 95 % einem Druck von 2,7 bar ausgesetzt.

Diese Anforderungen werden von herkömmlichen Nd-Fe-B-Dauermagneten nicht erfüllt.

Ausgehend von diesem Stand der Technik liegt der Erfindung die Aufgabe zugrunde, eine Legierung für Dauermagnete auf der Basis wenigstens einer Seltenen Erde, wenigstens eines Übergangsmetalls und Bor zu schaffen, die bei gleicher Remanenz  $B_r$  eine höhere Koerzitivfeldstärke  $H_{cJ}$  als herkömmliche Legierungen aufweist sowie über einen niedrigen Temperaturkoeffizient der Remanenz verfügt und korrosionsbeständig ist.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß durch eine Legierung mit den im Anspruch 1 angegebenen Merkmalen gelöst.

Herkömmliche Nd-Fe-B-Legierungen bestehen im wesentlichen aus drei Phasen: der hartmagnetischen  $\phi$ -Phase mit der Zusammensetzung  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ , der unmagnetischen  $\eta$ -Phase mit der Zusammensetzung  $\text{Nd}_{1,1}\text{Fe}_4\text{B}_4$  und der unmagnetischen Zwickelphase die nahezu ausschließlich aus Nd besteht. Die Nd-reiche Zwickelphase trennt die Körner der  $\phi$ -Phase magnetisch voneinander, was eine hohe Koerzitivfeldstärke  $H_{cJ}$  zur Folge hat. Bei zu geringen Konzentrationen an B besteht jedoch die Gefahr, daß sich an Stelle der unmagnetischen  $\eta$ -Phase die weichmagnetische  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ -Phase bildet, wodurch sich die Koerzitivfeldstärke  $H_{cJ}$  erheblich reduziert. Anders als bei herkömmlichen Nd-Fe-B-Legierungen entsteht bei den erfindungsgemäß hergestellten Legierungen beim Unterschreiten eines kritischen B-Gehalts an Stelle der unmagnetischen  $\eta$ -Phase nicht die für die Koerzitivfeldstärke  $H_{cJ}$  schädliche  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ -Phase, sondern

zunächst eine Reihe von unmagnetischen Ga-haltigen Phasen. Diese Ga-haltigen Phasen tragen im Gegensatz zur ferromagnetischen  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ -Phase zur magnetischen Entkopplung der Körner der  $\phi$ -Phase bei, wodurch sich die Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  und auch die Temperaturabhängigkeit der Legierung verbessert.

Der Erfindung liegt ferner die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zur Herstellung von Dauermagneten aus dieser Legierung anzugeben.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß durch ein Verfahren mit den im Anspruch 6 angegebenen Merkmalen gelöst.

Bei geschickter Temperaturführung können besonders hohe Werte für die Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  erzielt werden. Hervorzuheben ist dabei, daß insbesondere bei schneller Abkühlung besonders gute Werte für die Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  erreicht werden. Eine schnelle Abkühlung ist jedoch gleichbedeutend mit einer effektiven Nutzung der Öfen. Dagegen können bei langsamer Kühlung auch große Dauermagnetteile hergestellt werden, ohne daß sich in den Dauermagnetteilen Abkühlrisse bilden und sich die Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  wesentlich verringert.

Nachfolgend wird die Erfindung näher anhand der beigefügten Zeichnung erläutert. Es zeigen:

Figur 1 einen Ausschnitt aus einem Phasendiagramm für Nd-Fe-B-Dauermagnete;

Figur 2 eine Darstellung des Zusammenhangs zwischen Remanenz  $B_r$  und Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  für verschiedene Nd-Fe-B-Dauermagnete;

Figur 3 ein Diagramm mit der Temperaturführung beim Sintern und Anlassen;

- Figur 4 ein weiteres Diagramm mit einer weiteren möglichen Temperaturführung beim Sintern und Anlassen;
- Figur 5 eine Darstellung, aus der die Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  von der Art der Temperaturführung beim Sintern und Anlassen ersichtlich ist;
- Figur 6 ein Diagramm, aus dem die Abhängigkeit der Remanenz  $B_r$  vom effektiven Gehalt an Bor und Seltenen Erden hervorgeht;
- Figur 7 eine Darstellung, die die Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  bei 150°C vom effektiven Gehalt an Bor und Seltenen Erden bei langsamem Abkühlen zeigt;
- Figur 8 eine Darstellung, die die Abhängigkeit des Temperaturkoeffizienten der Koerzitivfeldstärke  $TK(H_{CJ})$  vom effektiven Gehalt an Bor und Seltenen Erden bei langsamem Abkühlen darstellt;
- Figur 9 eine Darstellung, die die Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  bei 150°C vom effektiven Gehalt an Bor und Seltenen Erden beim schnellen Abkühlen zeigt; und
- Figur 10 eine Darstellung, die die Abhängigkeit des Temperaturkoeffizienten  $TK(H_{CJ})$  der Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  vom effektiven Gehalt an Bor und Seltenen Erden bei schneller Kühlung darstellt.
- Figur 1 ist ein Phasendiagramm, das die Zusammensetzung einer Nd-Fe-B-Legierung in Abhängigkeit vom effektiven Gehalt an Bor und Seltenen Erden zeigt. Das für die Anwendung als Dauermagnet geeignete Gefüge tritt vor allem innerhalb eines Phasendreiecks 1 auf. Innerhalb dieses Phasendreiecks 1 besteht die Legierung aus hartmagnetischen Körnern der  $\phi$ -Phase mit der Zusammensetzung  $Nd_2Fe_{14}B$ , sowie aus Körnern der unma-



gnetischen  $\eta$ -Phase mit der Zusammensetzung  $\text{Nd}_{1,1}\text{Fe}_4\text{B}_4$  und der unmagnetischen Zwickelphase, die nahezu ausschließlich aus Nd besteht. Die Nd-reiche Zwickelphase trennt die Körner der  $\phi$ -Phase magnetisch voneinander, was notwendig ist, um eine hohe Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  zu erzielen.

Um beurteilen zu können, ob eine bestimmte Zusammensetzung der Legierung innerhalb oder außerhalb des Phasendreiecks 1 liegt, ist es zunächst notwendig, den Gehalt an Seltenen Erden und Bor bezüglich der Verunreinigungen zu korrigieren, da ein Teil des Nd in der Form von Nd-Oxiden, Nd-Nickelkarbiden und Nd-Nitriden gebunden ist. Der effektive Gehalt an Seltenen Erden  $[\text{SE}]_{\text{eff}}$  und der effektive Gehalt an Bor  $[\text{B}]_{\text{eff}}$  ergibt sich aus folgenden Formeln:

$$[\text{SE}]_{\text{eff}} = ([\text{SE}] - [\Delta \text{SE}])f,$$

$$[\text{B}]_{\text{eff}} = [\text{B}]f,$$

wobei  $[\text{SE}]$  und  $[\text{B}]$  jeweils die Gewichtsanteile an Seltenen Erden und Bor sind.  $[\Delta \text{SE}]$  ist der Anteil an Seltenen Erden, der in den Verbindungen  $\text{Nd}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Nd}_2\text{CO}$  und  $\text{NdN}$  gebunden ist.  $f$  ist ein Normierungsfaktor:

$$[\Delta \text{SE}] = 5,993 [\text{O}] + 16,05[\text{C}] + 10,30[\text{N}]$$

$$f = 100 / ([100 - [\Delta \text{SE}] - [\text{O}] - [\text{C}] - [\text{N}]]).$$

$[\text{O}]$ ,  $[\text{C}]$  und  $[\text{N}]$  sind dabei die Gewichtsanteile von O, C und N. In den genannten Formeln sind alle Angaben Konzentrationsangaben in Gew. %.

Der effektive Gehalt an Seltenen Erden und Bor beeinflusst den Aufbau des Gefüges. Im Punkt  $\eta$  des Phasendreiecks 1 liegt das Gefüge nahezu ausschließlich in Form der  $\eta$ -Phase vor. Im Punkt  $\phi$  des Phasendreiecks 1 ist die Legierung in der  $\phi$ -Phase, während sie im Punkt SE im wesentlichen aus der Nd-reichen Zwickelphase besteht. Der Anteil an der  $\eta$ -Phase kann im Prinzip beliebig klein sein. Bei einem zu geringen Bor-Gehalt be-

steht jedoch die Gefahr, daß sich an Stelle der unmagnetischen  $\eta$ -Phase die weichmagnetische  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ -Phase bildet, wodurch sich die Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  erheblich reduziert. Die Zusammensetzung der Nd-Fe-B-Dauermagnete wird demzufolge

5 herkömmlicherweise immer so gewählt, daß sie innerhalb des Phasendreiecks 1, insbesondere oberhalb der Konode 2 liegt. Die Werte für die jeweiligen Punkte im Phasendiagramm aus Figur 1 sind in Tabelle 1 eingetragen.

	SE in Gew.%	B-Gehalt in Gew.%	Fe-Gehalt in Gew.%
$\varphi$	26,68	1,000	Rest
$\eta$	37,3	10,2	Rest
Nd-reich	98	0	Rest
$\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$	23,3	0	Rest

10

Tabelle 1

Für viele Anwendungen von Nd-Fe-B-Dauermagneten, insbesondere in Motoren und Antrieben aller Art, ist nun aber die Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  bei 150°C wesentlich. Die Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  der verwendeten Nd-Fe-B-Dauermagnete soll bei geringer Gegenfelddbelastung wenigstens 4,5 kOe, besser wenigstens 5 kOe betragen. Bei höherer Gegenfelddbelastung sind noch höhere Werte oberhalb von 13 kOe bei 150°C gefordert.

15 Neben einer hohen Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  bei einer Temperatur von 150°C sollen derartige Nd-Fe-B-Dauermagnete auch eine möglichst hohe Remanenz  $B_r$  haben.

Insbesondere für die Anwendung in Motoren wird verlangt, daß

25 der reversible Temperaturkoeffizient der Remanenz TK ( $B_r$ ) im Temperaturbereich von 20°C bis 150°C besser als -0,11 %/K sein soll.

Zusätzlich sollen die Nd-Fe-B-Dauermagnete eine möglichst gute Korrosionsbeständigkeit haben, um aufwendige und teure Beschichtungen überflüssig zu machen.

30

Es wurde herausgefunden, daß sich durch den Zusatz von Gallium zur Legierung unterhalb der Konode 2 ein Phasengebiet 3 ausbildet, in dem neben der hartmagnetischen  $\phi$ -Phase und neben der unmagnetischen Nd-reichen Phase weitere Ga-haltige Phasen vorliegen. Eine Konode 4 trennt das Phasengebiet 3 von einem weiteren Phasengebiet 5, in dem die  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ -Phase überwiegt. Überraschenderweise ist es nun möglich, mit den Legierungen im Phasengebiet 3 die an Nd-Fe-B-Dauermagnete beim Einsatz in Motoren gestellten Anforderungen zu erfüllen. Diese Verbesserung läßt sich durch folgendes metallurgisches Modell erklären: bei herkömmlichen Nd-Fe-B-Dauermagneten entsteht die weichmagnetische, für die Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  schädliche  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ -Phase, wenn der durch die Grenzlinie 2 veranschaulichte kritische Bor-Gehalt unterschritten wird. Beim Zusatz von Gallium, Kobalt und Kupfer zur Nd-Fe-B-Legierung entsteht beim Unterschreiten der Grenzlinie 2 anstelle der unmagnetischen  $\eta$ -Phase nicht die  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ -Phase, sondern zunächst eine Reihe von unmagnetischen Ga-haltigen Phasen. Diese Ga-haltigen Phasen tragen im Gegensatz zum  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ -Phase zur magnetischen Entkopplung der Körner aus der  $\phi$ -Phase bei. Dadurch verbessert sich die Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  und auch deren Temperaturkoeffizient. Eine weitere Reduktion des Bor-Gehalts führt schließlich dann doch zur Bildung der  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ -Phase im Phasengebiet 5 und damit zum Zusammenbruch der Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$ .

Neben Gallium können auch Co und Cu der Legierung mit vorteilhafter Wirkung hinzugesetzt werden.

Durch Zulegieren von Co läßt sich beispielsweise der Temperaturkoeffizient der Remanenz TK ( $B_R$ ) von Nd-Fe-B-Dauermagneten verbessern. Insbesondere wird der Temperaturkoeffizient der Remanenz TK ( $B_R$ ) durch Zulegieren von 3 Gew.% Co von -0,12 %/K auf etwa -0,105 %/K verbessert. Wenn jedoch nur Co zulegiert wird, führt dies zur Bildung einer weichmagnetischen  $\text{SECo}_2$ -Laves-Phase, wodurch die Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  beträchtlich reduziert wird. Die Bildung dieser schädlichen

Laves-Phase läßt sich durch gleichzeitiges Zulegieren von Cu verhindern. Als günstig erwiesen hat sich der Zusatz von 0,05 bis 0,2 Gew.% Cu. Außerdem können Cu-haltige Nd-Fe-B-Dauermagnete nach einer im Herstellungsprozeß durchgeführten Wärmebehandlung langsam gekühlt werden, ohne daß die Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  wesentlich reduziert wird.

Die Beständigkeit der Nd-Fe-B-Dauermagnete gegen die Korrosion durch Wasserdampf wird durch zusätzliches Zulegieren von Co, Cu und Ga im Vergleich zu herkömmlichen Nd-Fe-B-Dauermagnete um etwa drei Größenordnungen verbessert. Dabei wird eine besonders reaktive Nd-reiche Zwickelphase weitgehend durch chemisch edlere Co-, Cu- und Ga-haltige Phasen ersetzt.

Durch diese Maßnahmen ergeben sich Nd-Fe-B-Dauermagnete, die im sogenannten HAST-Test nach zehn Tagen einen auf die Oberfläche des Nd-Fe-B-Dauermagneten bezogenen Masseverlust von  $< 1 \text{ mg/cm}^2$  aufweisen. Im sogenannten HAST-Test werden die Nd-Fe-B-Dauermagnete bei einer Temperatur von  $130^\circ\text{C}$  und einer relativen Luftfeuchtigkeit von 95 % einem Druck von 2,7 bar ausgesetzt.

Außerdem ist es möglich, die Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  zu erhöhen, indem ein Teil des Nd durch Dy, Tb oder Ho ersetzt wird, ohne daß das Verhältnis von Gehalt an Seltenen Erden zum Gehalt an Fe und B wesentlich verändert wird. Da sich das magnetische Moment von Dy, Tb und Ho im Gegensatz zu Nd antiparallel zum magnetischen Moment von Fe ausrichtet, führt dies zwangsläufig zu einer Reduktion der erreichbaren Remanenz  $B_r$ . Dies bedeutet, daß die Zunahme der Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  mit einer Abnahme der Remanenz  $B_r$  verbunden ist.

Dieser Zusammenhang ist in Figur 2 und der zugehörigen Tabelle 2 dargestellt.

Legierung	SE, effektiv	B, effektiv	Dy	Co	Cu	Ga	H <sub>CJ</sub> (20°C, kOe)	H <sub>CJ</sub> (150°C, kOe)	B <sub>r</sub> (20°C, T)
A 1	29,2	0,98	3	-	-	-	17	3,5	1,33
A 2	29,5	0,98	4,6	-	-	-	21	5	1,28
A 3	29,6	0,98	6,5	-	-	-	26	8	1,22
A 4	29,7	0,98	8,6	-	-	-	31	11	1,16
B 1	29,3	0,94	3	3	0,15	0,23	18	5,3	1,35
B 2	29,5	0,94	5,5	3	0,15	0,23	23	8	1,28
B 3	30	0,93	9,5	3	0,15	0,23	31	13	1,18

Tabelle 2

5 Die Legierungen A1 bis A4 stellen herkömmliche Legierungen mit den in der Tabelle 2 angegebenen Zusammensetzungen dar. Bei den Legierungen B1 bis B3 handelt es sich um Legierungen gemäß der Erfindung. Anhand von Figur 2 wird deutlich, daß mit zunehmendem Gehalt an Dy zwar die Koerzitivfeldstärke zu-  
10 nimmt, aber die Remanenz abnimmt.

Außerdem läßt Figur 2 erkennen, daß die Legierungen, denen Co, Cu und Ga zulegiert worden ist, bei gleicher Remanenz B<sub>r</sub> im Vergleich zu herkömmlichen Legierungen eine höhere Koerzitivfeldstärke H<sub>CJ</sub> aufweisen. Letzteres gilt nicht nur für  
15 Raumtemperatur, sondern insbesondere auch bei 150°C.

Nd-Fe-B-Legierungen mit einem Gehalt von Dy im Bereich 3 Gew.% sind nun systematisch untersucht worden. Die Ergebnisse  
20 dieser Untersuchungen sind in den Tabellen 3 und 4 aufgeführt. Im Rahmen dieser Untersuchungen hat sich herausgestellt, daß die magnetischen Eigenschaften der Nd-Fe-B-Dauermagnete wesentlich von der Temperaturführung während der im Rahmen des Herstellprozesses durchgeführten Wärmebehand-  
25 lungen abhängen.

Nd-Fe-B-Legierungen werden üblicherweise dadurch hergestellt, daß zunächst die Legierung mit den gewünschten Zusammensetzungen erschmolzen und zu einem Schmelzblock abgegossen wird.

Der Schmelzblock wird dann zu Pulver zerkleinert und gegebenenfalls zur Korrektur der Endzusammensetzung mit anderen Pulvern gemischt. Das fertige Pulver wird dann in einem Magnetfeld ausgerichtet und parallel oder senkrecht zur Magnetfeldrichtung oder auch durch isostatischen Druck zu Grünlingen verpreßt. Die Grünlinge werden anschließend, wie in Figur 3 und 4 dargestellt, einem Sintervorgang 6 unterzogen. Bei dem in Figur 3 dargestellten Beispiel der Temperaturführung wird nach dem Sintervorgang 6 eine Wärmebehandlung 7 durchgeführt. Die Abkühlung von der Anlaßtemperatur kann langsam, wie in Figur 3, oder schnell, wie in Figur 4, erfolgen.

In Figur 5 ist die Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  in Abhängigkeit vom effektiven Bor-Gehalt und der Abkühlgeschwindigkeit  $\Delta T/\Delta t$  dargestellt. Aus Figur 5 geht hervor, daß eine hohe Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  bei einem hohen Bor-Gehalt nur in einem engen Temperaturfenster zwischen 440 und 500°C erreicht wird. Bei niedrigem effektivem Bor-Gehalt dagegen können hohe Koerzitivfeldstärken  $H_{CJ}$  in einem größeren Temperaturfenster erzielt werden. So nimmt die Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  mit abnehmendem Bor-Gehalt um nahezu 3 kOe zu. Durch eine schnelle Abkühlung unterhalb von 750°C im Rahmen des Sintervorgangs und durch schnelles Abkühlen von der Anlaßtemperatur läßt sich die Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  noch einmal um etwa 1 kOe erhöhen.

Von besonderem Interesse sind die hohen Koerzitivfeldstärken  $H_{CJ}$ , die sich trotz langsamer Kühlung bei einem niedrigen effektiven Gehalt an Bor von 0,92 Gew.% ergeben. Dies ist insbesondere dann von Vorteil, wenn Nd-Fe-B-Dauermagnete mit großen Querschnittsflächen hergestellt werden sollen. Denn für derartige Teile sind während der Sinterung und der Wärmebehandlung nur geringe Abkühlgeschwindigkeiten  $\Delta T/\Delta t < 10$  K/min zulässig, um Abkühlrisse zu vermeiden. Diese geringen Abkühlgeschwindigkeiten dürfen jedoch nur zu einer geringfügigen Verschlechterung der magnetischen Eigenschaften führen. Gemäß Figur 5 ist es durchaus möglich, Nd-Fe-B-Dauermagnete

nach der Wärmebehandlung langsam mit Abkühlgeschwindigkeiten im Bereich von 1 bis 2 K/min ohne wesentliche Beeinträchtigung der magnetischen Eigenschaften abzukühlen, sofern nur die Nd-Fe-B-Legierung borarm ist. Unter einer borarmen Nd-Fe-B-Legierung ist dabei eine Legierung zu verstehen, deren effektiver Bor-Gehalt unterhalb der Konode 2 liegt.

In den Tabellen 3 und 4 sind Zusammensetzungen und magnetischen Eigenschaften von isostatisch gepreßten Nd-Fe-B-Dauermagneten mit unterschiedlichem effektivem Gehalt an Seltenen Erden und Bor aufgelistet. Die fett gedruckten Angaben beziehen sich auf die borarmen Legierungen gemäß der Erfindung. Alle Nd-Fe-B-Dauermagnete sind nach dem gängigen pulvermetallurgischen Verfahren hergestellt und bei etwa 1060°C auf eine Dichte  $> 7,6 \text{ g/cm}^3$  gesintert worden. Die in Tabelle 3 aufgeführten Nd-Fe-B-Dauermagnete sind von Sintertemperatur langsam mit etwa 1 bis 2 K/min auf Raumtemperatur abgekühlt worden. Danach sind diese bei einer Temperatur von 440°C bis 560°C für ein bis zwei Stunden getempert worden und wieder langsam mit etwa 1 bis 2 K/min auf Raumtemperatur abgekühlt worden. Die in Tabelle 4 aufgelisteten Magnete sind von Sintertemperatur zunächst langsam mit etwa 2 K/min auf etwa 750°C und nach einer Haltezeit von etwa 1 Stunde mit etwa 30 bis 50 K/min schnell auf Raumtemperatur abgeschreckt worden. Diese Nd-Fe-B-Dauermagnete wurden nach einer anschließenden Temperung bei 470 bis 530°C wiederum schnell mit etwa 30 bis 50 K/min auf Raumtemperatur abgekühlt.

In Figur 6 sind die Werte für die Remanenz  $B_r$  für die Legierungen aus Tabelle 3 in Abhängigkeit vom effektiven Gehalt an Bor und Seltenen Erden eingetragen. Zwei Niveaulinien verdeutlichen die Tendenz der zunehmenden Remanenz  $B_r$  bei abnehmendem effektivem Seltenen-Erden-Gehalt und zunehmendem effektivem Bor-Gehalt. Bei einem effektiven Seltenen-Erden-Gehalt von  $< 30 \text{ Gew.}\%$  und einem effektiven Bor-Gehalt von  $> 0,93 \text{ Gew.}\%$  wird für isostatisch gepreßte Nd-Fe-B-Dauermagnete eine Remanenz  $B_r$  von mehr als 1,35 T erreicht. Bezüg-

lich des Bor-Gehalts geht die Remanenz  $B_r$  knapp unterhalb der Grenzlinie 2 zum Phasendreieck 1 durch ein Maximum.

5 In Figur 7 ist die Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärke bei 150°C für die langsam gekühlten Nd-Fe-B-Dauermagnete aus Tabelle 3 dargestellt. Aus Figur 7 kann man entnehmen, daß sich mit abnehmendem effektivem Bor-Gehalt die Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  bei 150°C erhöht. Gleiches gilt auch für die Koerzitivfeldstärke bei 20°C.

10

Figur 8 zeigt schließlich die Abhängigkeit des Temperaturkoeffizienten von  $H_{CJ}$  für langsam gekühlte Nd-Fe-B-Dauermagnete in Abhängigkeit vom effektiven Gehalt an Seltenen Erden und Bor. Auch hier ergeben sich mit abnehmendem effektivem  
15 Bor-Gehalt zunehmend bessere Werte für die Temperaturkoeffizienten. Zusammen mit der ansteigenden Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  führt dies für langsam gekühlte Magnete zu einer Erhöhung der Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  bei 150°C von unter 4,5 kOe auf Werte bis zu über 5,5 kOe. Diese besonders hohen Werte für  
20 die Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ}$  ergeben sich insbesondere für einen Seltenen-Erden-Gehalt  $[SE]_{eff}$  von mehr als 28,9 Gew.%, wobei für den effektiven Bor-Gehalt die Beziehung gilt:

$$1,814 - 0,0303[SE]_{eff} \leq [B]_{eff} \leq 1,396 - 0,01491[SE]_{eff}$$

25

Das gleiche Bild zeigt sich für Nd-Fe-B-Dauermagnete, die von etwa 750°C und von Anlaßtemperatur schnell abgekühlt wurden. Gemäß Figur 9 und 10 werden allerdings sowohl für die Temperaturabhängigkeit als auch für die Absolutwerte im Vergleich  
30 zu den langsam gekühlt Nd-Fe-B-Dauermagnete etwas bessere Werte erreicht. Dadurch erweitert sich der Bereich, in dem die geforderten Eigenschaften, nämlich eine Remanenz  $B_r > 1,35$  T bei Raumtemperatur und eine Koerzitivfeldstärke  $H_{CJ} > 5$  kOe bei 150°C, erreicht werden.

35

Besonders hohe Werte für die Koerzitivfeldstärke bei 150°C ergeben sich für einen effektiven Gehalt an Seltenen Erden



13

oberhalb von 28,5 Gew.%, insbesondere 28,7 Gew.%, wobei für den effektiven Bor-Gehalt die Beziehung gilt:

$$1,814 - 0,0303 [SE]_{\text{eff}} \leq [B]_{\text{eff}} \leq 1,478 - 0,01801 [SE]_{\text{eff}}$$

5

Abschließend sei angemerkt, daß neben Nd auch Pr verwendet werden kann, ohne daß die magnetischen Eigenschaften der Dauermagnete beeinträchtigt werden.

Zusammensetzung in Gew.%						Anlaß- temp. (°C)	B <sub>r</sub> (20°C) (T)	(BH) max (MGOe)	H <sub>cJ</sub> (20°C) (kOe)	H <sub>cJ</sub> (150°C) (kOe)	TK(H <sub>cJ</sub> ) (20-150°C) (%/K)
SE, effektiv	B, effektiv	Dy	Co	Cu	Ga	(°C)	(T)	(MGOe)	(kOe)	(kOe)	(%/K)
28,1	0,99	2,8	3,1	0,15	0,22	470	1,386	46,6	16,16	4	-0,579
28,1	0,99	2,8	3,1	0,15	0,22	500	1,372	45,7	15,06		-0,570
28,1	0,99	2,8	3,1	0,15	0,22	530	1,382	46,4	15,57		
28,9	0,98	2,8	3	0,13	0,2	470	1,383	46,4	16,88	4,08	-0,583
28,9	0,98	2,8	3	0,13	0,2	500	1,378	46,1	17,24	4,39	-0,573
28,9	0,98	2,8	3	0,13	0,2	530	1,391	47,0	16,4	3,84	-0,589
29,6	0,97	2,8	2,9	0,1	0,18	470	1,376	46,0	16,27	4,02	-0,579
29,6	0,97	2,8	2,9	0,1	0,18	500	1,36	44,9	16,63	4,11	-0,579
29,6	0,97	2,8	2,9	0,1	0,18	530	1,374	45,8	9,96		
28,7	0,94	2,9	3,1	0,17	0,22	500	1,374	45,8	15,69	4,42	-0,553
28,65	0,95	2,9	3,1	0,16	0,22	500	1,356	44,6	16,43	4,51	-0,558
28,6	0,96	3	3,2	0,16	0,22	500	1,375	45,9	16,89	4,59	-0,560
28,55	0,97	3	3,2	0,15	0,22	500	1,375	45,9	17,58	4,42	-0,576
28,5	0,98	3	3,2	0,15	0,21	500	1,382	46,4	17,15	4,42	-0,571
29,8	0,92	3,1	3,0	0,16	0,22	500	1,341	43,6	18,08	5,36	-0,541
29,8	0,93	3,1	3,0	0,15	0,22	500	1,352	44,4	18,24	5,26	-0,547
29,8	0,95	3,1	3,0	0,15	0,22	500	1,355	44,6	18,11	5,04	-0,555
29,8	0,96	3,1	3,0	0,14	0,22	500	1,363	45,1	17,34	4,49	-0,570
29,8	0,98	3,1	3,0	0,14	0,22	500	1,348	44,1	17,42	4,41	-0,574
29,9	0,94	3,3	3,1	0,14	0,21	440	1,369	45,5	15,95	3,79	-0,586
29,9	0,94	3,3	3,1	0,14	0,21	470	1,342	43,7	17,71	4,67	-0,566
29,9	0,94	3,3	3,1	0,14	0,21	500	1,353	44,4	17,79	4,6	-0,570
29,9	0,94	3,3	3,1	0,14	0,21	530	1,352	44,4	10,62		
29,9	0,94	3,3	3,1	0,14	0,21	560	1,311	41,7	9,55		
29,2	0,93	2,9	3	0,19	0,25	470	1,364	45,2	16,56	4,67	-0,552
29,2	0,93	2,9	3	0,19	0,25	500	1,351	44,3	17	4,95	-0,545
29,2	0,93	2,9	3	0,19	0,25	530	1,366	45,3	16,38	5	-0,534
29,5	0,93	2,9	3	0,17	0,23	470	1,347	44,0	17,57	5,12	-0,545
29,5	0,93	2,9	3	0,17	0,23	500	1,331	43,0	18,21	5,39	-0,542
29,5	0,93	2,9	3	0,17	0,23	530	1,344	43,8	17,97	5,42	-0,537
29,9	0,92	2,9	3	0,16	0,22	470	1,341	43,6	18,62	5,42	-0,545
29,9	0,92	2,9	3	0,16	0,22	500	1,331	43,0	19,08	5,71	-0,539
29,9	0,92	2,9	3	0,16	0,22	530	1,307	41,5	18,56	5,61	-0,537

Tabelle 3

Zusammensetzung in Gew. %						Anlaß- temp.	B <sub>r</sub> (20°C)	(BH) <sub>max</sub>	H <sub>cJ</sub> (20°C)	H <sub>cJ</sub> (150°C)	TK(H <sub>cJ</sub> ) (20-150°C)
SE, effektiv	B, effektiv	Dy	Co	Cu	Ga	(°C)	(T)	(MGOe)	(kOe)	(kOe)	(%/K)
28,7	0,94	2,9	3,1	0,17	0,22	500	1,37	45,6	17,16	4,99	-0,546
28,65	0,95	2,9	3,1	0,16	0,22	500	1,341	43,6	18,02	5,15	-0,549
28,6	0,96	3	3,2	0,16	0,22	500	1,374	45,8	17,43	4,9	-0,553
28,55	0,97	3	3,2	0,15	0,22	500	1,372	45,7	16,33	4,61	-0,552
28,5	0,98	3	3,2	0,15	0,21	500	1,362	45,0	16,69	4,79	-0,551
29,8	0,92	3,1	3	0,16	0,22	500	1,343	43,8	18,3	5,59	-0,534
29,8	0,93	3,1	3	0,15	0,22	500	1,351	44,3	18,46	5,5	-0,539
29,8	0,95	3,1	3	0,15	0,22	500	1,35	44,2	18,17	5,18	-0,550
29,8	0,96	3,1	3	0,14	0,22	500	1,354	44,5	16,87	4,71	-0,554
29,8	0,98	3,1	3	0,14	0,22	500	1,344	43,8	16,91	4,78	-0,552
28,8	0,95	3	2,8	0,14	0,26	500	1,359	44,8	18,65	5,66	-0,536
28,8	0,95	3	2,8	0,14	0,26	530	1,361	45,0	18,22	5,67	-0,530
29,2	0,93	2,9	3	0,19	0,25	470	1,354	44,5	18,61	5,65	-0,536
29,2	0,93	2,9	3	0,19	0,25	500	1,343	43,8	18,87	5,67	-0,538
29,2	0,93	2,9	3,0	0,19	0,25	530	1,355	44,6	18,73	5,82	-0,530
29,5	0,93	2,9	3,0	0,17	0,23	470	1,342	43,7	19,71	5,83	-0,542
29,5	0,93	2,9	3,0	0,17	0,23	500	1,323	42,5	19,56	5,92	-0,536
29,5	0,93	2,9	3,0	0,17	0,23	530	1,329	42,9	19,9	6,09	-0,534
29,9	0,92	2,9	3	0,16	0,22	470	1,337	43,4	20,3	6,09	-0,538
29,9	0,92	2,9	3	0,16	0,22	500	1,343	43,8	19,8	5,9	-0,539
29,9	0,92	2,9	3	0,16	0,22	530	1,335	43,3	20	6,09	-0,535

Tabelle 4

## Patentansprüche

1. Legierung aus wenigstens einer Seltenen Erde einschließlich Yttrium, aus Eisen, aus den Elementen B, Co, Cu, Ga und  
 5 Al sowie aus herstellungsbedingten Verunreinigungen, wobei  
 für die effektive Seltenen-Erde-Gehalt  $[SE]_{eff}$ , den effektiven  
 Bor-Gehalt  $[B]_{eff}$ , den gemeinsamen Gehalt an Dy, Tb und  
 Ho  $[Dy + Tb + Ho]$ , den Kobalt-Gehalt  $[Co]$ , den Kupfer-Gehalt  
 [Cu] und den Gallium-Gehalt [Ga] sowie den Aluminium-Gehalt  
 10 [Al] die Beziehungen gelten:

$$\begin{aligned}
 &26,9 \text{ Gew.}\% \leq [SE]_{eff} \leq 33 \text{ Gew.}\% \\
 &2,185 - 0,0442 [SE]_{eff} \leq [B]_{eff} \leq 1,363 - 0,0136 [SE]_{eff} \\
 &\quad [Dy + Tb + Ho] \leq 17 \text{ Gew.}\% \\
 15 \quad &0,5 \text{ Gew.}\% \leq [Co] \leq 5 \text{ Gew.}\% \\
 &0,05 \text{ Gew.}\% \leq [Cu] \leq 0,3 \text{ Gew.}\% \\
 &0,05 \text{ Gew.}\% \leq [Ga] \leq 0,35 \text{ Gew.}\% \\
 &0,02 \text{ Gew.}\% \leq [Al] \leq 0,3 \text{ Gew.}\%
 \end{aligned}$$

20 2. Legierung nach Anspruch 1,  
 dadurch gekennzeichnet,  
 daß für den effektiven Borgehalt  $[B]_{eff}$  die Beziehung gilt:

$$1,814 - 0,0303 [SE]_{eff} \leq [B]_{eff} \leq 1,363 - 0,0136 [SE]_{eff}.$$

25

3. Legierung nach Anspruch 1 oder 2,  
 dadurch gekennzeichnet,  
 daß der Seltenen-Erden-Gehalt  $[SE]_{eff}$  oberhalb von 28,9 Gew. %  
 liegt, wobei für den effektiven Bor-Gehalt die Beziehung  
 30 gilt:

$$1,814 - 0,0303 [SE]_{eff} \leq [B]_{eff} \leq 1,396 - 0,01491 [SE]_{eff}$$

4. Legierung nach Anspruch 1 oder 2,  
 35 dadurch gekennzeichnet,  
 daß der Seltenen-Erden-Gehalt  $[SE]_{eff}$  oberhalb von 28,5 Gew. %  
 liegt, wobei für den effektiven Bor-Gehalt die Beziehung gilt:

$$1,814 - 0,0303 [SE]_{\text{eff}} \leq [B]_{\text{eff}} \leq 1,478 - 0,01801 [SE]_{\text{eff}}$$

5. Legierung nach Anspruch 4,  
dadurch gekennzeichnet,  
5 daß der Seltenen-Erden-Gehalt  $[SE]_{\text{eff}}$  oberhalb von 28,7 Gew.%  
liegt.
6. Legierung nach einem der Ansprüche 1 bis 5,  
dadurch gekennzeichnet,  
10 daß die Legierung einen Co-Gehalt zwischen 2,5 und 3,5 Gew.%  
aufweist.
7. Legierung nach einem der Ansprüche 1 bis 6,  
dadurch gekennzeichnet,  
15 daß der Cu-Gehalt zwischen 0,1 und 0,2 Gew.% liegt.
8. Legierung nach einem der Ansprüche 1 bis 7,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß der Ga-Gehalt zwischen 0,20 und 0,30 Gew.% liegt.  
20
9. Legierung nach einem der Ansprüche 1 bis 8,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß die Seltenen Erden aus der Gruppe der Elemente Nd, Pr,  
Dy, Tb ausgewählt sind.  
25
10. Verfahren zur Herstellung eines Dauermagneten aus einer  
Legierung nach einem der Ansprüche 1 bis 9 mit folgenden Ver-  
fahrensschritten:
- Orientieren im Magnetfeld und Pressen von Pulver, das  
30 durch Zerkleinern wenigstens eines Schmelzkörpers herge-  
stellt worden ist, zu einem Grünling;
  - Sintern des Grünlings bei Temperaturen zwischen 1020 °C  
und 1140 °C;
  - Abkühlen des Grünlings auf Temperaturen unterhalb von 300  
35 °C, wobei oberhalb von 800 °C mit einer mittleren Kühlge-  
schwindigkeit  $\Delta T_1 / \Delta t_1 < 5$  K/min abgekühlt wird; und

- Anlassen und Abkühlen des Grünlings, wobei für die Anlaßtemperatur  $T_A$  in Abhängigkeit von einer mittleren Kühlgeschwindigkeit  $\Delta T_2/\Delta t_2$  folgende Beziehungen gelten:

5 für  $\Delta T_2/\Delta t_2 < 5$  K/min:

$$450\text{ °C} \leq T_A \leq 550\text{ °C} \text{ für } [B]_{\text{eff}} < 2,993 - 0,069 [SE]_{\text{eff}}$$

$$460\text{ °C} \leq T_A \leq 510\text{ °C} \text{ für } [B]_{\text{eff}} > 2,993 - 0,069 [SE]_{\text{eff}}$$

10 für  $5\text{ K/min} \leq \Delta T_2/\Delta t_2 \leq 100\text{ K/min}$ :

$$450\text{ °C} \leq T_A \leq 550\text{ °C}.$$

11. Verfahren nach Anspruch 10,  
15 dadurch gekennzeichnet,  
daß nach dem Sintern der Grünling für eine Zeit zwischen einer halben Stunde und 2 Stunde auf einer Haltetemperatur zwischen 700 und 800 °C gehalten wird.

20 12. Verfahren nach Anspruch 11,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß der Rohkörper nach dem Sintern von Haltetemperatur mit einer mittleren Kühlgeschwindigkeit  $\Delta T_3/\Delta t_3 > 5$  K/min abgekühlt wird.

25 13. Verfahren nach Anspruch 12,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß die Kühlgeschwindigkeiten  $\Delta T_2/\Delta t_2$  und  $\Delta T_3/\Delta t_3$  zwischen 30 und 50 K/min liegen.

30 14. Verfahren nach Anspruch 10 oder 11,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß der Rohkörper nach dem Sintern von Haltetemperatur mit einer mittleren Kühlgeschwindigkeit  $\Delta T_3/\Delta t_3 < 5$  K/min abgekühlt wird.  
35

19

15. Verfahren nach Anspruch 14,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß die Kühlgeschwindigkeiten  $\Delta T_1/\Delta t_1$  bis  $\Delta T_3/\Delta t_3$  zwischen 1  
und 2 K/min liegen.

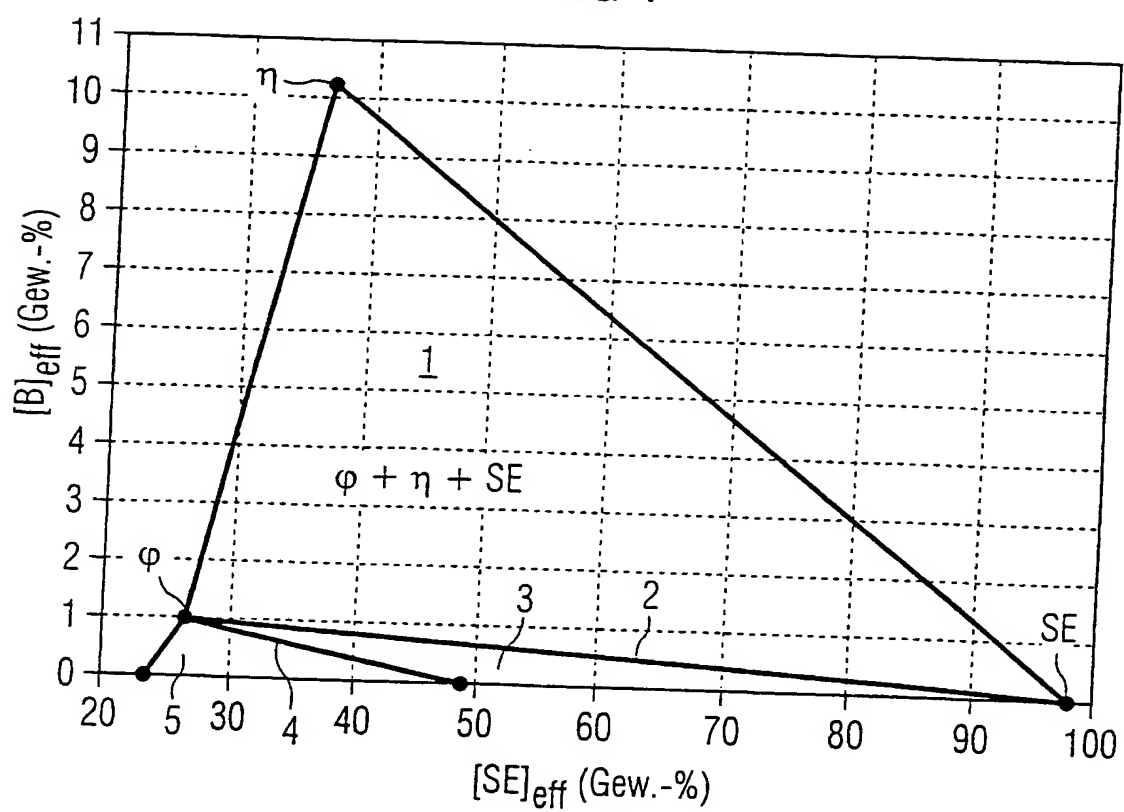
5



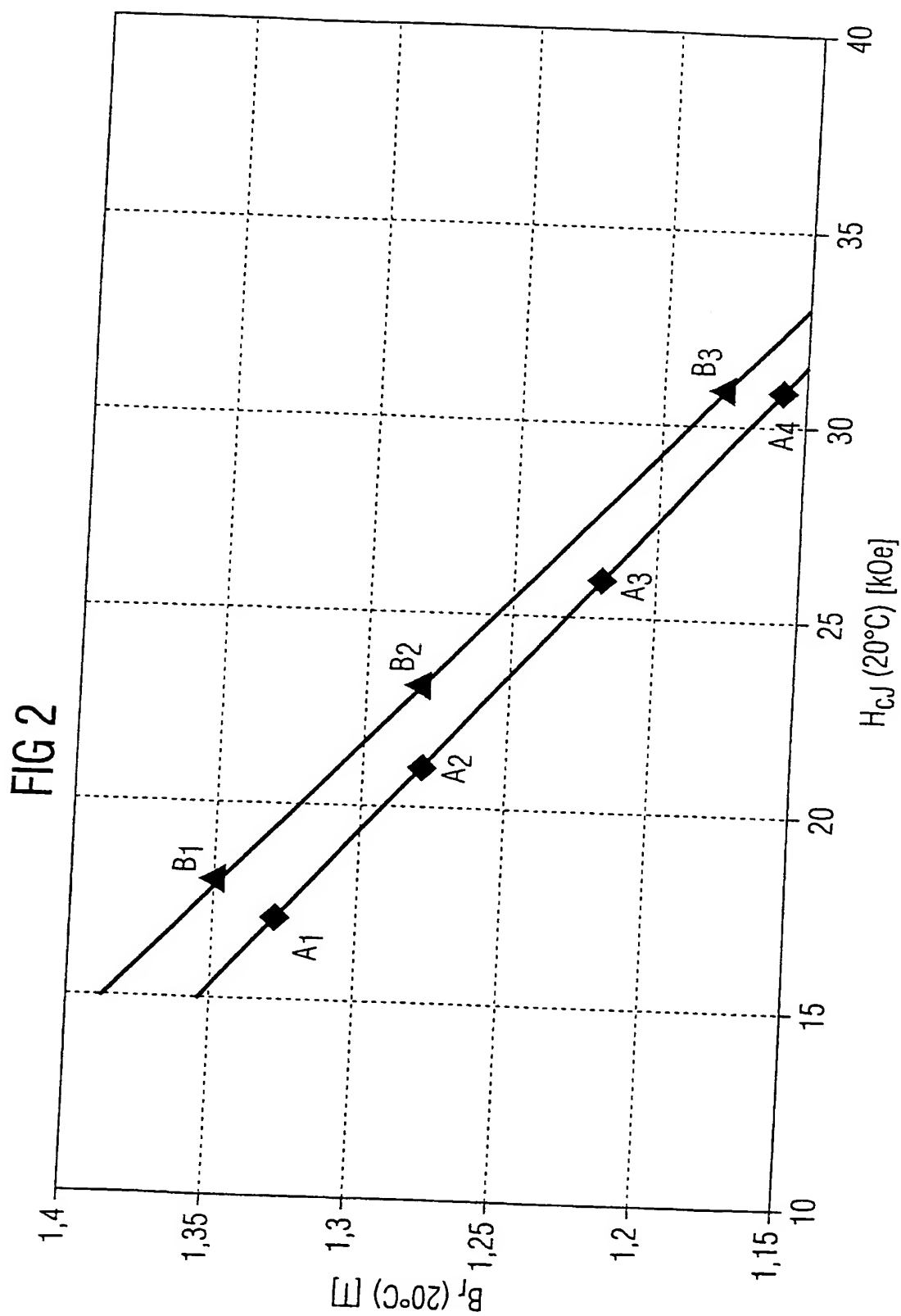


1/9

FIG 1









3/9

FIG 3

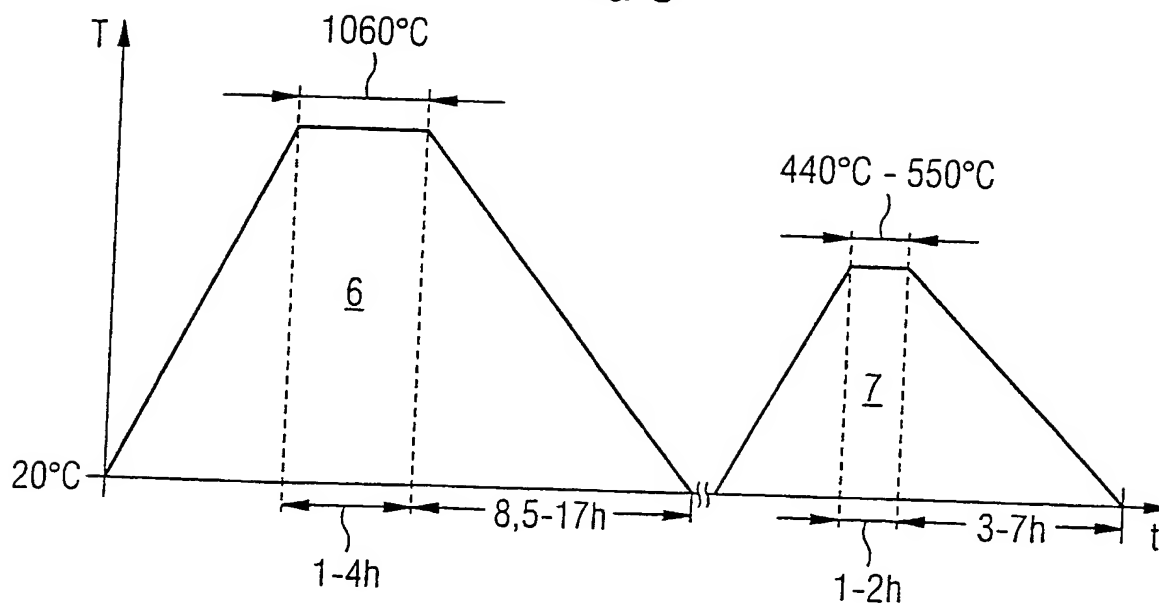
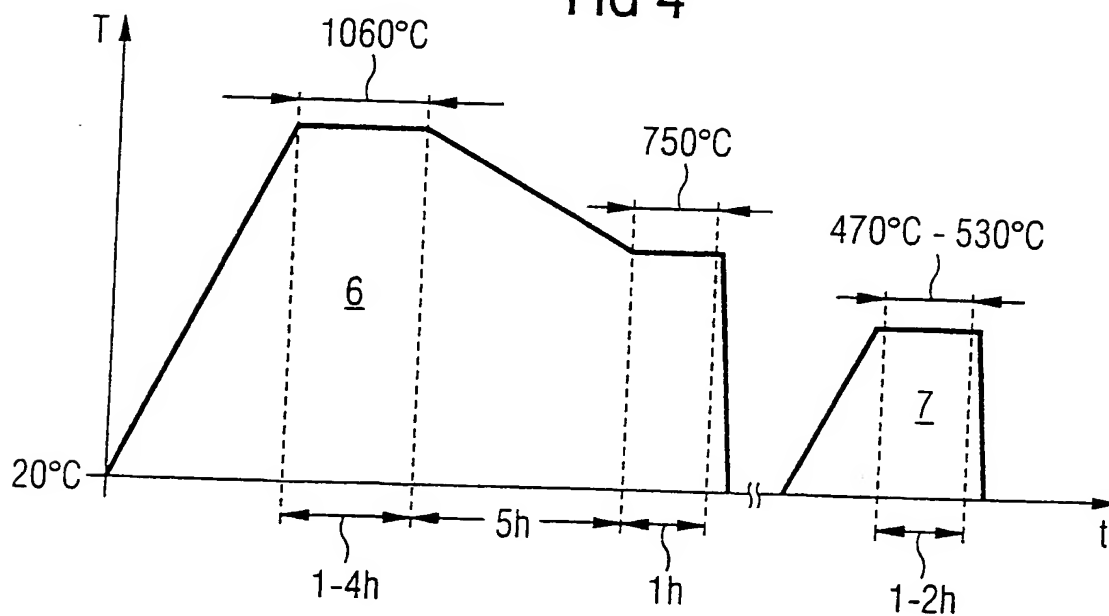
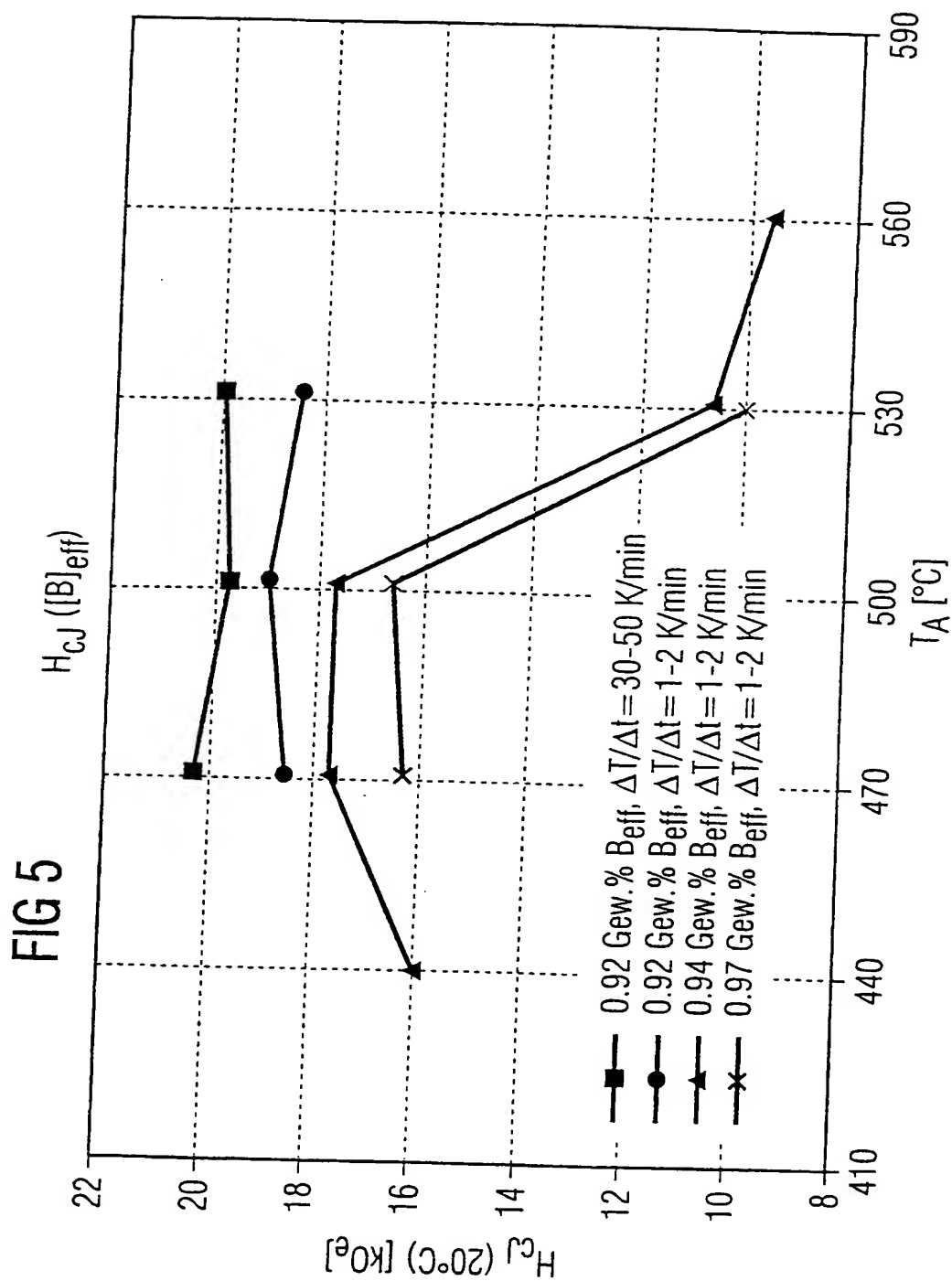


FIG 4





4/9







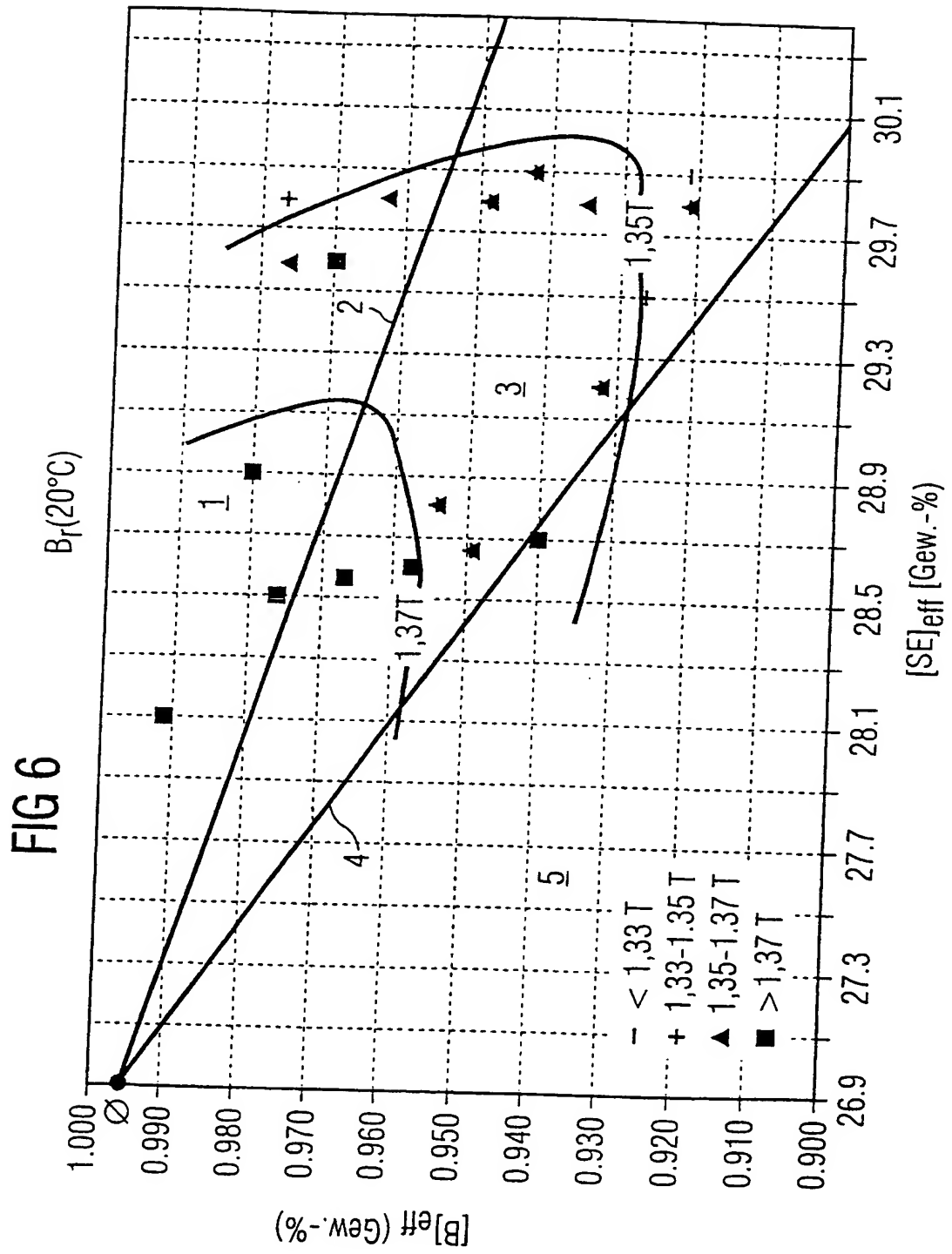
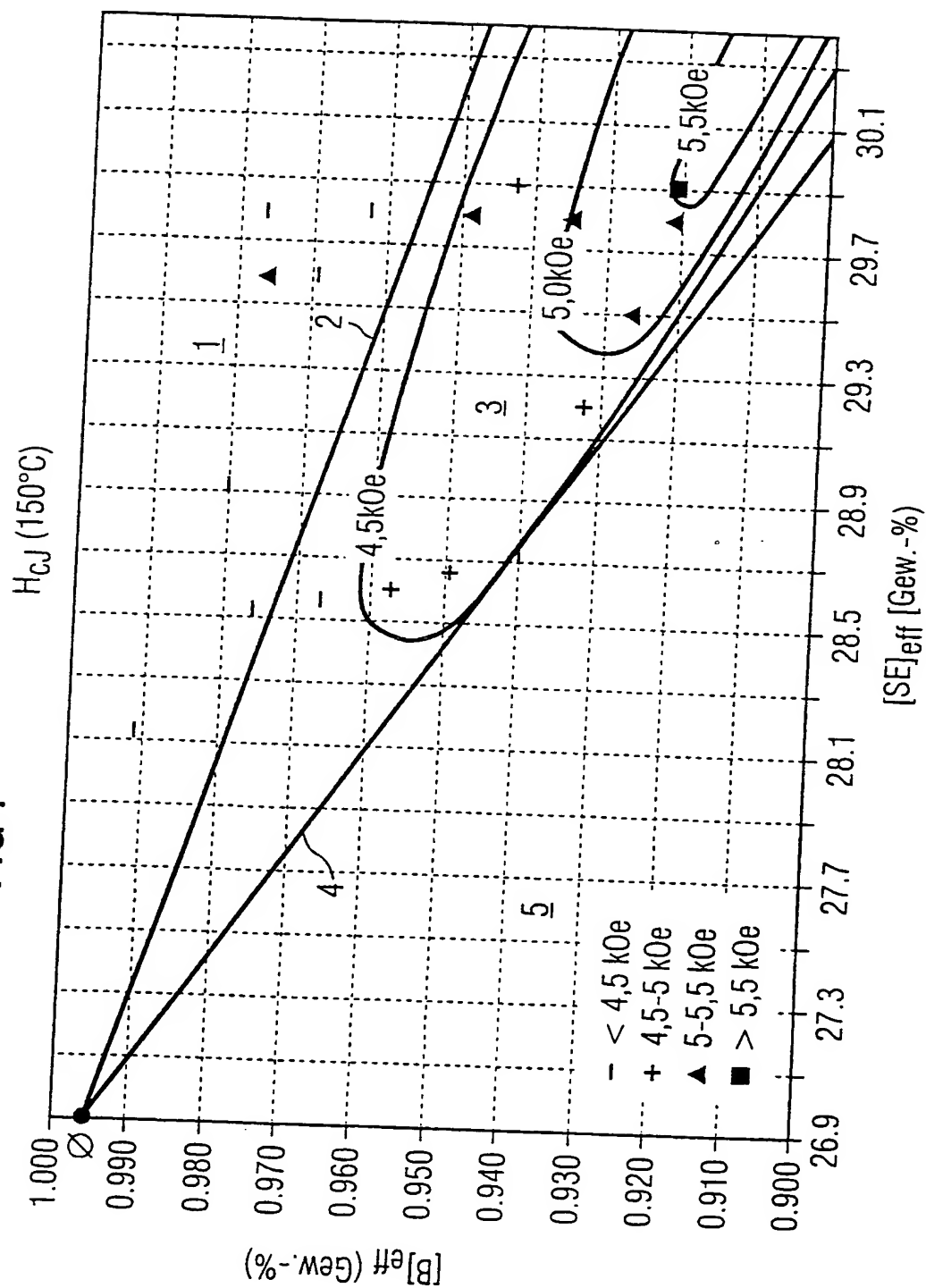




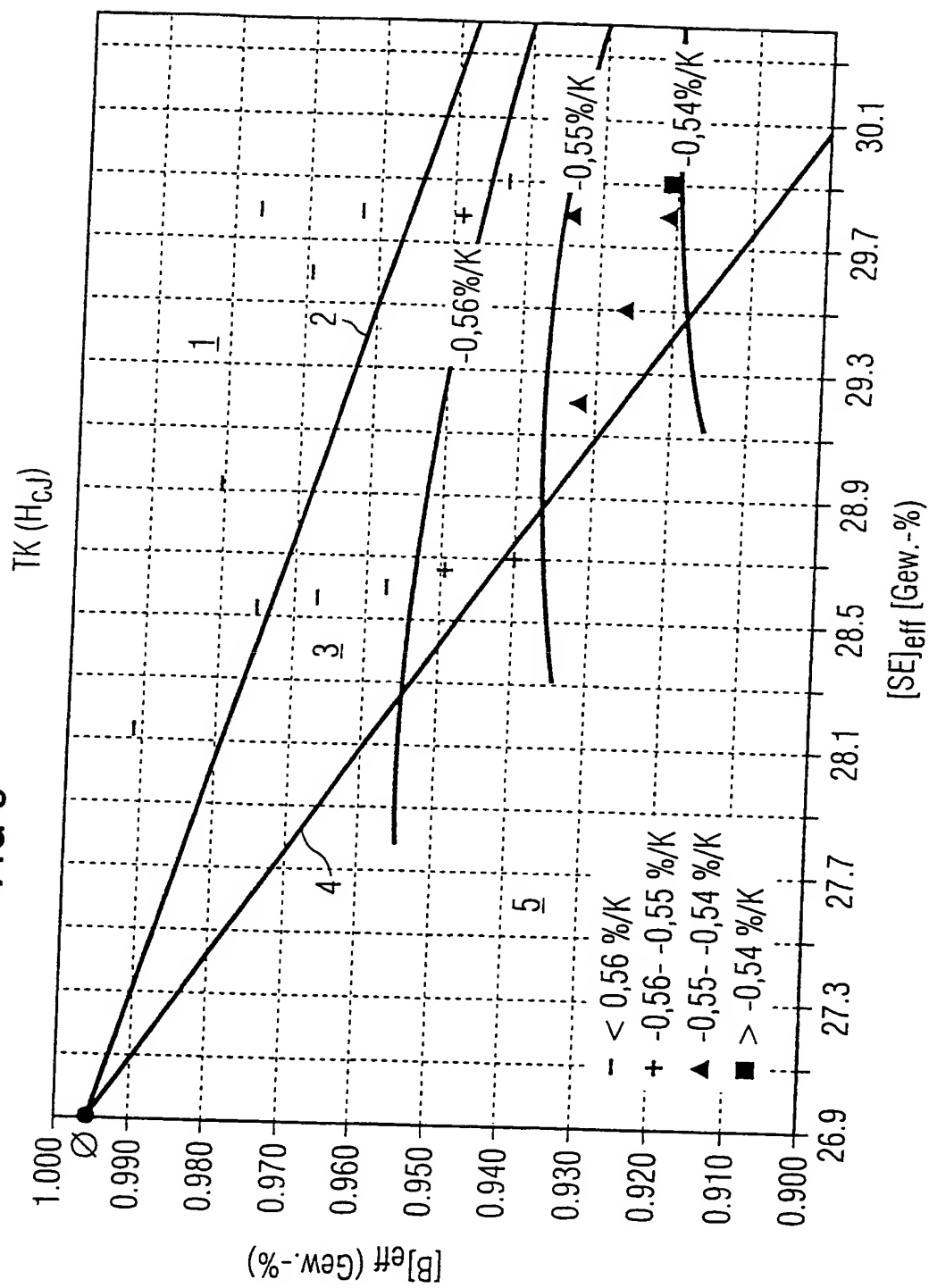
FIG 7





7/9

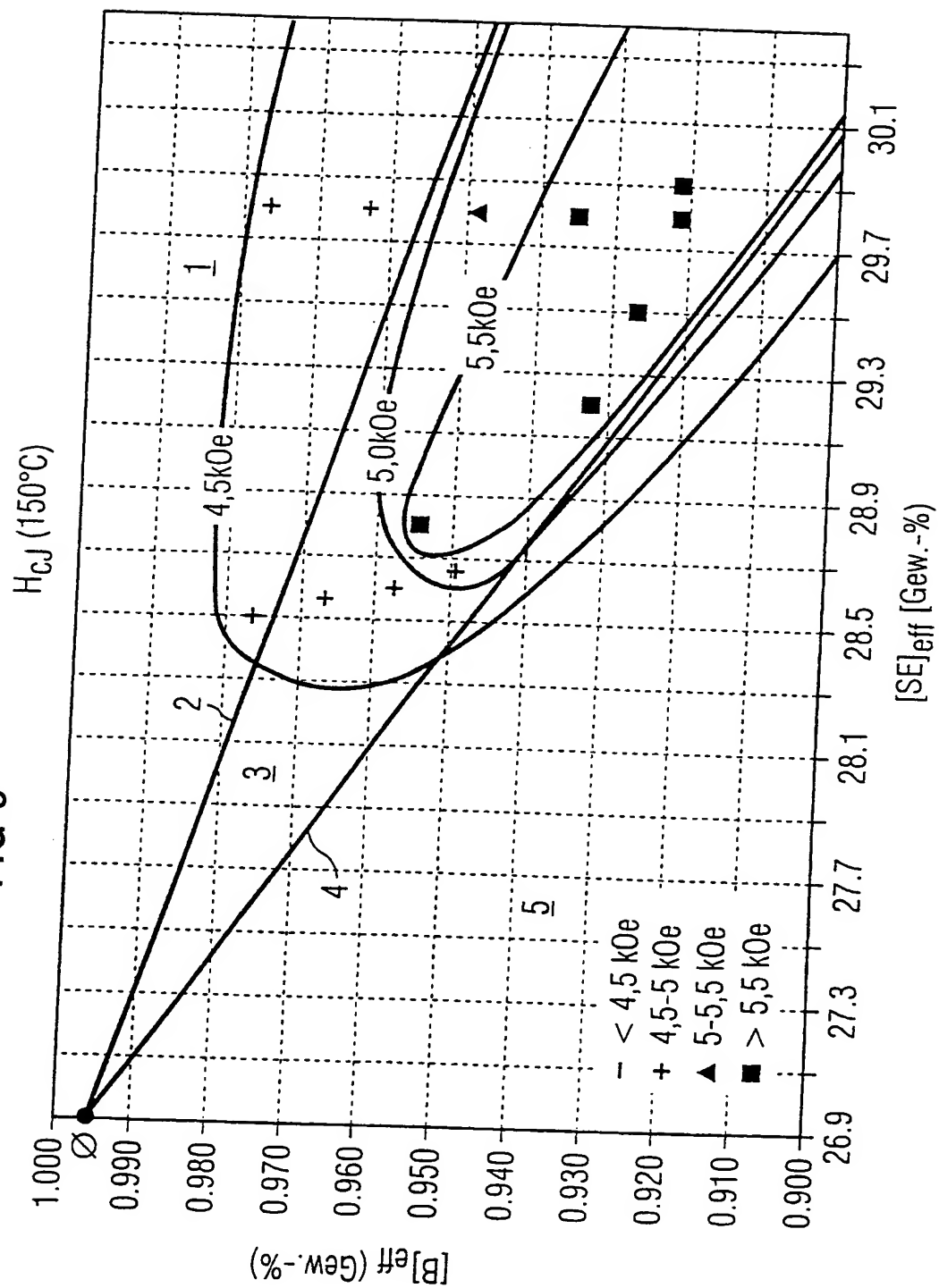
FIG 8





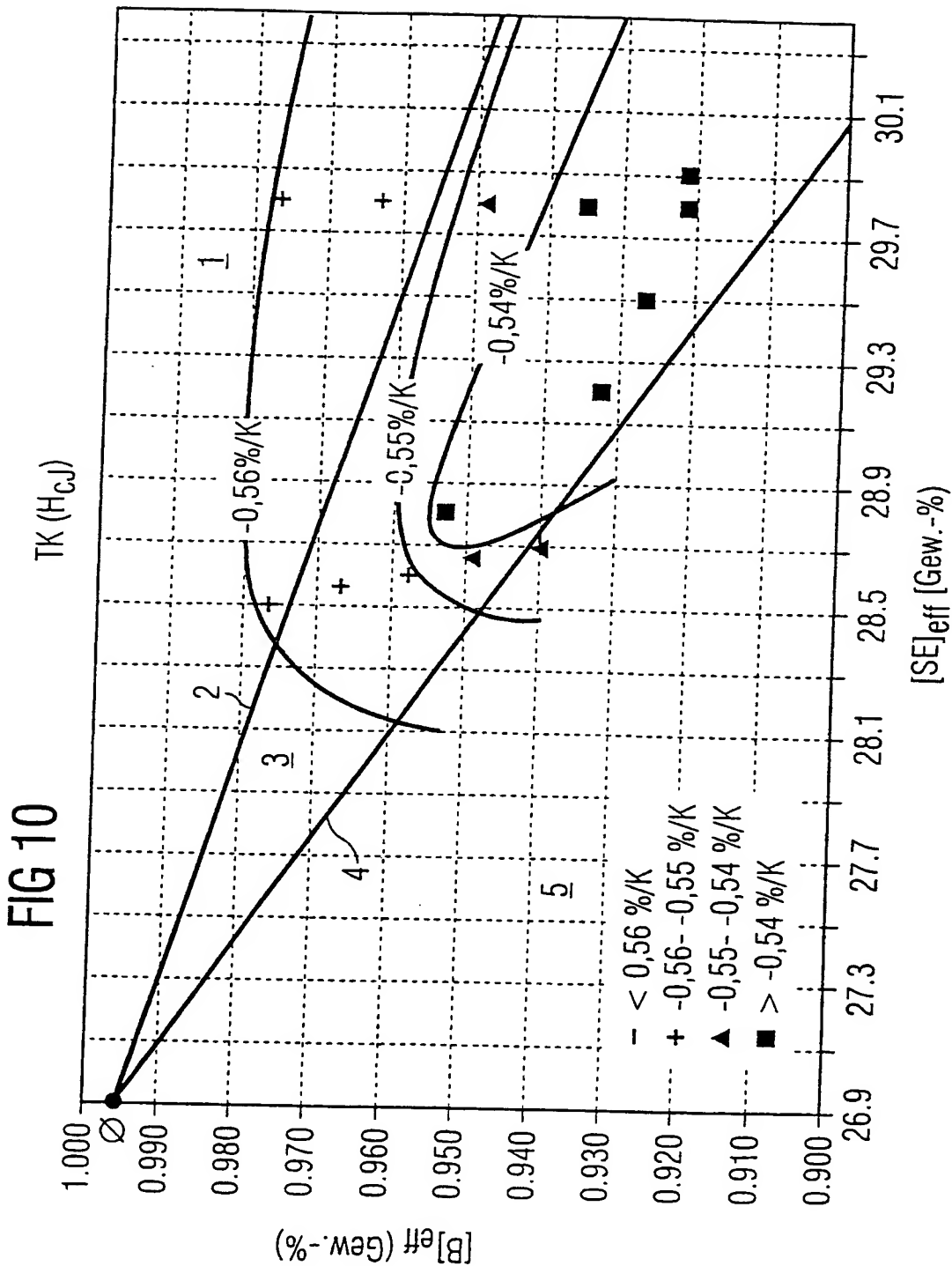
8/9

FIG 9











PC17EP 00/09128

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Interr  
1st Application No  
/EP 00/09128

## C(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	<p>PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1996, no. 11, 29 November 1996 (1996-11-29) &amp; JP 08 181010 A (HITACHI METALS LTD), 12 July 1996 (1996-07-12) abstract</p> <p>-----</p>	1,9

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/09128

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0680054 A	02-11-1995	US 5480471 A	02-01-1996
		DE 69503957 D	17-09-1998
		DE 69503957 T	14-01-1999
		US 5589009 A	31-12-1996
EP 0753867 A	15-01-1997	JP 9027409 A	28-01-1997
		JP 2966342 B	25-10-1999
		JP 9260122 A	03-10-1997
		CN 1157992 A	27-08-1997
		US 6080245 A	27-06-2000
		US 5858123 A	12-01-1999
		US 5997804 A	07-12-1999
JP 10289813 A	27-10-1998	NONE	
JP 08181010 A	12-07-1996	NONE	



# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

### INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts <b>vac328wo</b>	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5	
Internationales Aktenzeichen <b>PCT/EP 00/ 09128</b>	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) <b>18/09/2000</b>	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) <b>24/09/1999</b>
Anmelder  <b>VACUUMSCHMELZE GMBH et al.</b>		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 3 Blätter.



Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

#### 1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.



Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

- b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das



in der internationalen Anmeldung in Schriftlicher Form enthalten ist.



zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.



bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.



bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.



Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.



Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

#### 4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfindung



wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.



wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

#### 5. Hinsichtlich der Zusammenfassung



wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.



wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der **Zeichnungen** ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. 7



wie vom Anmelder vorgeschlagen



keine der Abb.



weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.



weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.





**A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES**  
 IPK 7 H01F1/057

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

**B. RECHERCHIERTE GEBIETE**

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
 IPK 7 H01F

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, PAJ, WPI Data, INSPEC

**C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN**

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 0 680 054 A (CRUCIBLE MATERIALS CORP) 2. November 1995 (1995-11-02)	1,9
A	Seite 3, Zeile 19 - Zeile 30; Ansprüche 1-6; Tabelle 10	10
X	EP 0 753 867 A (HITACHI METALS LTD) 15. Januar 1997 (1997-01-15)	1,9
A	Ansprüche 1,4; Tabelle 2	10
X	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1999, no. 01, 29. Januar 1999 (1999-01-29) & JP 10 289813 A (HITACHI METALS LTD), 27. Oktober 1998 (1998-10-27) Zusammenfassung	1,9

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

\*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

\*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

\*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

\*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

\*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

\*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

\*&\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

24. November 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

30/11/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
 Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
 NL - 2280 HV Rijswijk  
 Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
 Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Decanniere, L



## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1996, no. 11, 29. November 1996 (1996-11-29) & JP 08 181010 A (HITACHI METALS LTD), 12. Juli 1996 (1996-07-12) Zusammenfassung -----	1,9



# PATENT COOPERATION TREATY

EO/US  
PCT/EP00/09128

**PCT**

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner  
US Department of Commerce  
United States Patent and Trademark  
Office, PCT  
2011 South Clark Place Room  
CP2/5C24  
Arlington, VA 22202  
ETATS-UNIS D'AMERIQUE  
in its capacity as elected Office

Date of mailing: 05 April 2001 (05.04.01)	Applicant's or agent's file reference: vac328wo
International application No.: PCT/EP00/09128	Priority date: 24 September 1999 (24.09.99)
International filing date: 18 September 2000 (18.09.00)	
Applicant: KATTER, Matthias et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International preliminary Examining Authority on:  
16 January 2001 (16.01.01)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was  
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer:  J. Zahra Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	---

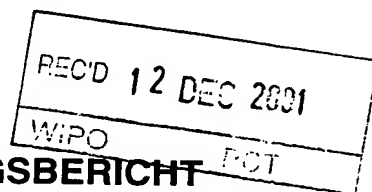


# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)



T4



Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts vac328wo	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/09128	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 18/09/2000	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 24/09/1999
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK H01F1/057		
Anmelder VACUUMSCHMELZE GMBH et al.		

- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 8 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
  - ☐ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☒ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☒ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags  16/01/2001	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  10.12.2001
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:   Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter  Haering, C  Tel. Nr. +49 89 2399 8010 





**I. Grundlag des Berichts**

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):  
**Beschreibung, Seiten:**

1-15                      ursprüngliche Fassung

**Patentansprüche, Nr.:**

1-15                      ursprüngliche Fassung

**Zeichnungen, Blätter:**

1/9-9/9                      ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:



# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/09128

- ☐ Beschreibung,      Seiten:  
☐ Ansprüche,      Nr.:  
☐ Zeichnungen,      Blatt:
5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).*

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

## V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

### 1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	10-15
	Nein: Ansprüche	1-9
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	10-15
	Nein: Ansprüche	
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-15
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen  
**siehe Beiblatt**

## VII. Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Es wurde festgestellt, daß die internationale Anmeldung nach Form oder Inhalt folgende Mängel aufweist:  
**siehe Beiblatt**

## VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:  
**siehe Beiblatt**



**Zu Punkt V**

**Begründete Feststellung nach Regel 66.2(a)(ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

**1. Offenbarungen:**

D1: EP-A-0 680 054

D2: EP-A-0 753 867

D3: PATENT ABSTRACTS OF JAPAN JP 10 289813 A

D4: PATENT ABSTRACTS OF JAPAN JP 08 181010 A

1.1. Dokument D1 offenbart eine Legierung eines Dauermagneten aus folgenden Elementen (Seite 2, Zeilen 29 bis 38):

- a. 27 bis 35 Gew.% Seltene Erden, wovon mehr als die Hälfte Neodym ist,
- b. 0,8 bis 1,3 Gew.% Bor,
- c. bis zu 30 Gew.% Cobalt,
- d. bis zu 1 Gew.% Kupfer und/oder Gallium (vorzugsweise 0,05 bis 0,5 Gew.%),
- e. bis zu 5 Gew.% Aluminium und
- f. Eisen (40 - 75 Gew.%).
- g. Eine Legierung nach Anspruch 1 (mit 1 Gew.% Bor) wird in den Beispielen in Tabelle IX auf Seite 9 gegeben.
- h. Das Verfahren zur Herstellung des Dauermagneten wird auf Seite 3, Zeilen 19 bis 37 beschrieben und unterscheidet sich von dem der vorliegenden Anmeldung dadurch, daß nach dem Sintern bei 900-1100°C der Magnet zweimal getempert wird, bei 800-900°C und bei 450-750°C. Keine Kühlgeschwindigkeit wird angegeben.

1.2. Dokument D2 offenbart eine Legierung eines Dauermagneten aus folgenden Elementen (Zusammenfassung, Anspruch 1):

- a. 27 bis 31 Gew.% Seltene Erden,
- b. 0,5 bis 2 Gew.% Bor,
- c. 0,3 bis 5 Gew.% Cobalt,
- d. 0,01 bis 1,0 Gew.% Kupfer, 0,01 bis 0,5 Gew.% Gallium,
- e. 0,02 bis 2 Gew.% Aluminium, und
- f. der Rest besteht aus Eisen.
- g. Eine Legierung nach Anspruch 1 (mit 1 Gew.% Bor) wird in den Beispielen 5, 9 in



Tabelle 2 auf Seite 14, Beispielen 12, 13 und Vergleichsbeispiel 10 in Tabelle 7 auf Seite 18 gegeben.

- h. Das Verfahren zur Herstellung des Dauermagneten wird auf Seite 6, Zeilen 30 bis 46 beschrieben und unterscheidet sich von dem der vorliegenden Anmeldung dadurch, daß nach dem Sintern bei 1000-1200°C der Magnet zweimal getempert wird, bei 800-1000°C und bei 400-650°C. Keine Kühlgeschwindigkeit wird angegeben.
- 1.3. Dokument D3 offenbart eine Legierung eines Dauermagneten aus folgenden Elementen (Zusammenfassung, Anspruch 1):
- a. 27 bis 31 Gew.% Seltene Erden,
  - b. 0,8 bis 1,2 Gew.% Bor,
  - c. 0,5 bis 50 Gew.% Cobalt, und
  - d. 0,01 bis 1,0 Gew.% Kupfer, Gallium, und/oder
  - e. Aluminium, und
  - f. der Rest besteht aus Eisen.
  - g. Eine Legierung nach Anspruch 1 wird in den Beispielen 1 (Teil [0012]), 2 (Teil [0013]) und dem Vergleichsbeispiel 3 (Teil [0016]) gegeben.
  - h. Das Verfahren zur Herstellung des Dauermagneten wird in Teil [0012] beschrieben und unterscheidet sich von dem der vorliegenden Anmeldung dadurch, daß nach dem Sintern bei 1070°C wird das Magnet zweimal getempert, bei 900°C und bei 480°C. Keine Kühlgeschwindigkeit wird angegeben.
- 1.4. Dokument D4 offenbart eine Legierung eines Dauermagneten aus folgenden Elementen (Zusammenfassung, Anspruch 1):
- a. 27 bis 36 Gew.% Seltene Erden,
  - b. 0,95 bis 1,2 Gew.% Bor,
  - c. bis zu 6 Gew.% Cobalt, und
  - d. bis zu 0,5 Gew.% Kupfer, bis zu 0,5 Gew.% Gallium,
  - e. 0,1 bis 1,0 Gew.% Aluminium, und
  - f. der Rest besteht aus Eisen.
  - g. Keine Legierung mit einem effektiven Borgehalt von weniger als 1 Gew.% ist jedoch offenbart.
  - h. Das Verfahren zur Herstellung des Dauermagneten wird in Teil [0011] beschrieben und unterscheidet sich von dem der vorliegenden Anmeldung: nach dem Sintern wird





das Magnet zweimal getempert, bei 800-1000°C und bei 450-650°C. Keine Kühlgeschwindigkeit wird angegeben.

**2. Neuheit:**

- 2.1. Der Gegenstand des Anspruchs 1 ist nicht neu nach Artikel 33(1) und (2) PCT gegenüber den Dokumenten D1 bis D4 (siehe 1.1.a. bis 1.1.g., 1.2.a., etc.), unter der Berücksichtigung der Klarheitseinwände unter Punkt VIII, 1.b..
- 2.2. Sowie bei Anspruch 1, ist der Gegenstand des Anspruchs 2 auch nicht neu.
- 2.3. Der Gegenstand der Ansprüche 3 bis 9 ist nicht neu gegenüber D3 (siehe 1.3.).
- 2.4. Der Gegenstand des Anspruchs 10 ist neu, da keiner der im Recherchenbericht zitierten Dokumente auf ein Verfahren nach diesem Anspruch hinweist.

**3. Erfinderische Tätigkeit:**

Dokument D1 (D2, D3, oder D4), das als nächstliegender Stand der Technik angesehen wird, offenbart (vgl. 1.1.h., 1.2.h, ...) ein Verfahren, von dem sich der Gegenstand des Anspruchs 10 dadurch unterscheidet, daß das erste Anlassen während des Abkühlens beim Sintern erfolgt, und die Abkühlgeschwindigkeiten festgelegt sind.

Die mit der vorliegenden Erfindung zu lösende Aufgabe kann somit darin gesehen werden, die neue Legierung nach Anspruch 1 herzustellen.

Die in Anspruch 10 der vorliegenden Anmeldung für diese Aufgabe vorgeschlagene Lösung beruht auf einer erfinderischen Tätigkeit, weil kein Hinweis auf den notwendigen Phasenbestand der Magnetischen Legierung im Stand der Technik gegeben wird. Außerdem unterscheiden sich die Schritte des Verfahrens von denen des im Stand der Technik üblichen Verfahrens.

**Zu Punkt VII**

**B stimmt Mängel der internationalen Anmeldung**



1. Die auf **Seiten 1** (Z. 24, 25, 26 und 30), **2** (Z. 7), **6** (Z. 17, 18 und 19), **9** (Tab. 2), **10** (Z. 21, 25), **12** (Z. 18, 19), **14** (Tab. 3) und **15** (Tab. 4) und **Fig. 2, 5, 7 und 9** verwendeten Einheiten "kOe" und "bar" sind zusätzlich mit den SI-Einheiten nach Regel 10.1 PCT anzugeben.
2. Im Anspruch 10, "Anlassen und Abkühlen des Grünlings" heißt eher "Anlassen und Abkühlen des gesinterten Körpers".

### **Zu Punkt VIII**

#### **Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung**

1. Anspruch 1 ist unklar nach Artikel 6 PCT aus folgenden Gründen:
  - a. Die Grenzwerte, die den effektiven Gehalt an seltenen Erde bestimmen, sind arbiträr ausgewählt und nicht von der Beschreibung unterstützt (maximal 33 Gew.%, obwohl es in allen Beispielen weniger als 30 Gew.% ist).
  - b. Der Gehalt an Bor ist als Funktion des Gehalts an seltenen Erden definiert, die Funktion findet aber keine Basis in der Beschreibung. Umgerechnet liegt dieser zwischen 0,7264 und 0,997 Gew.%, wobei 0,7262 Gew.% weit außerhalb des untersuchten Bereichs (Beispiele) liegt. Einfacher wäre gleich den Gehalt zwischen 0,9 und 1,0 Gew.% zu definieren bzw. zu beanspruchen, wie es in diesem Bescheid angenommen worden ist.
  - c. Das gleiche gilt für die Grenzwerte der anderen Elemente.
  - d. Aluminium ist in der Beschreibung weder zitiert noch erwähnt.
  - e. Der Gehalt [Dy + Tb + Ho] ist nicht beschrieben (nur Dy, Seiten 8 und 9).
  - f. Daß der Gehalt an Eisen dem Rest der Zusammensetzung der Legierung entspricht, fehlt.
2. Anspruch 2 ist auch nicht von der Beschreibung unterstützt (siehe 1.a. und c.).
3. Die Ansprüche 3 und 4, sowie die entsprechenden Abschnitte in der Beschreibung, sind unklar weil sie sich nur geringfügig unterscheiden:
  - im Anspruch 3 liegt der Gehalt [SE]<sub>eff</sub> oberhalb von 28,9 Gew.% und somit der Gehalt [B]<sub>eff</sub> unterhalb von 0,9651 Gew.%,
  - während im Anspruch 4 [SE]<sub>eff</sub> oberhalb von 28,5 Gew.% und [B]<sub>eff</sub> unterhalb von 0,9647 Gew.% liegt. Einer der beiden Anspruch scheint überflüssig zu sein.



4. Die Art und Weise, das "Anlassen und Abkühlen" bzw. die Anlaßtemperatur im Anspruch 10 zu beanspruchen, ist unklar; die angesprochenen Bereiche sind zwar in Fig. 5 zu erkennen, sie sind jedoch nicht von der Beschreibung unterstützt, entgegen den Anforderungen des Artikels 6 PCT.

Klarer (und einfacher) wäre  $T_A$  in Abhängigkeit der Geschwindigkeit anzugeben:

- für  $\Delta T/\Delta t < 5 \text{ K/min}$ ,  $440^\circ\text{C} < T_A < 560^\circ\text{C}$  (siehe Beschreibung S. 11, Z. 18-20)
- für  $\Delta T/\Delta t > 5 \text{ K/min}$ ,  $470^\circ\text{C} < T_A < 530^\circ\text{C}$  (siehe Beschreibung S. 11, Z. 25-27).



**Translation**

**PATENT COOPERATION TREATY**

**PCT**

**INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT**

(PCT Article 36 and Rule 70)

3

Applicant's or agent's file reference vac328wo	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP00/09128	International filing date (day/month/year) 18 September 2000 (18.09.00)	Priority date (day/month/year) 24 September 1999 (24.09.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC H01F 1/057		
Applicant VACUUMSCHMELZE GMBH		

<p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>8</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of _____ sheets.</p>	
<p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input checked="" type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input checked="" type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p>	

Date of submission of the demand 16 January 2001 (16.01.01)	Date of completion of this report 10 December 2001 (10.12.2001)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.





# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP00/09128

## I. Basis of the report

### 1. With regard to the **elements** of the international application:\*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:  
 pages 1-15, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☒ the claims:  
 pages 1-15, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☒ the drawings:  
 pages 1/9-9/9, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

### 2. With regard to the **language**, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item. These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

### 3. With regard to any **nucleotide and/or amino acid sequence** disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

### 4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig. \_\_\_\_\_

### 5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.



# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.  
PC P 00/09128

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

### 1. Statement

Novelty (N)	Claims	10-15	YES
	Claims	1-9	NO
Inventive step (IS)	Claims	10-15	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-15	YES
	Claims		NO

### 2. Citations and explanations

#### 1. Disclosures:

D1: EP-A-0 680 054

D2: EP-A-0 753 867

D3: PATENT ABSTRACTS OF JAPAN (JP-A-10 289 813)

D4: PATENT ABSTRACTS OF JAPAN (JP-A-08 181 010)

1.1 D1 discloses a permanent magnet alloy comprising the following elements (page 2, lines 29-38) (all percentages by weight):

a. 27-35% rare earths, of which neodymium represents more than half,

b. 0.8-1.3% boron,

c. up to 30% cobalt

d. up to 1% copper and/or gallium (preferably 0.05-0.5%),

e. up to 5% aluminium, and

f. iron (40-75%).

g. An alloy according to Claim 1 (containing 1% boron) is shown in the examples in Table IX on page 9.

h. The process for producing the permanent magnet is described on page 3, lines 19-37, and differs from the present application in that, after



sintering at 900-1100 DEG C, the magnet is twice tempered, at 800-900 and 450-750 DEG C. No cooling rate is indicated.

- 1.2 D2 discloses a permanent magnet alloy comprising the following elements (abstract, Claim 1) (all percentages by weight):
- a. 27-31% rare earths,
  - b. 0.5-2% boron,
  - c. 0.3-5% cobalt
  - d. 0.01-1.0% copper, 0.01-0.5% gallium,
  - e. 0.02-2% aluminium, and
  - f. the remainder is comprised of iron.
  - g. An alloy according to Claim 1 (containing 1% boron) is shown in Examples 5 and 9 in Table 2 on page 14 and Examples 12 and 13 and Comparative Example 10 in Table 7 on page 18.
  - h. The process for producing the permanent magnet is described on page 6, lines 30-46, and differs from the present application in that, after sintering at 1000-1200 DEG C, the magnet is twice tempered, at 800-1000 and 400-650 DEG C. No cooling rate is indicated.
- 1.3 D3 discloses a permanent magnet alloy comprising the following elements (abstract, Claim 1) (all percentages by weight):
- a. 27-31% rare earths,
  - b. 0.8-1.2% boron,
  - c. 0.5-50% cobalt
  - d. 0.01-1.0% copper, gallium and/or
  - e. aluminium, and
  - f. the remainder is comprised of iron.
  - g. An alloy according to Claim 1 is shown in Examples 1 (Part[0012], 2 (Part[0013]) and



Comparative Example 3 (Part[0016]).

h. The process for producing the permanent magnet is described in Part [0012] and differs from the present application in that, after sintering at 1070 DEG C, the magnet is twice tempered, at 900 and 480 DEG C. No cooling rate is indicated.

1.4 D4 discloses a permanent magnet alloy comprising the following elements (abstract, Claim 1) (all percentages by weight):

- a. 27-36% rare earths,
- b. 0.95-1.2% boron,
- c. up to 6% cobalt, and
- d. up to 0.5 % copper, up to 0.5% gallium,
- e. 0.1-1.0% aluminium, and
- f. the remainder is comprised of iron.
- g. However, no alloy with an effective boron content >1% is disclosed.
- h. The process for producing the permanent magnet is described in Part [0011] and differs from the present application in that, after sintering, the magnet is twice tempered, at 800-1000 and 450-650 DEG C. No cooling rate is indicated.

## 2. Novelty:

2.1 The subject matter of Claim 1 is not novel over D1-D4 (see 1.1.a - 1.1.g, 1.2.a, etc.) according to PCT Article 33(1) and (2), having regard to the objections to lack of clarity in Box VIII, 1.b.

2.2 The subject matter of Claim 2 is likewise not novel over D1-D4.





- 2.3 The subject matter of Claims 3-9 is not novel over D3 (see 1.3).
- 2.4 The subject matter of Claim 10 is novel, since none of the citations in the search report indicates a process according to this claim.

3. *Inventive step*

D1 (or D2 or D3 or D4), which is considered to represent the closest prior art, discloses (cf. 1.1.h, 1.2.h, etc.) a process from which the subject matter of Claim 10 differs in that the first tempering of the alloy occurs during cooling in the sintering step and the cooling rates are fixed.

The problem addressed by the present invention may therefore be seen to consist in producing the novel alloy according to Claim 1.

The solution to this problem proposed in Claim 10 of the present application involves an inventive step because the prior art does not indicate the necessary phase composition of the magnetic alloy. Moreover, the process steps differ from those of the conventional prior art process.



## VII. Certain defects in the international application

The following defects in the form or contents of the international application have been noted:

1. According to PCT Rule 10.1, the units "kOe" and "bar" (see **page 1**, lines 24, 25, 26 and 30, **page 2**, line 7, **page 6**, lines 17, 18 and 19, **page 9**, Table 2, **page 10**, lines 21 and 25, **page 12**, lines 18 and 19, **page 14**, Table 3, **page 15**, Table 4, and **Figures 2, 5, 7 and 9**) should also be expressed in terms of the metric system.
2. In Claim 10 the phrase "tempering and cooling of the green compact" should read more accurately "tempering and cooling of the sintered body".



## VIII. Certain observations on the international application

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

1. Claim 1 is unclear (PCT Article 6) for the following reasons:
  - a. The limiting values determining the effective content of rare earths are selected arbitrarily and not supported by the description (maximum 33% by weight, although a content of >30% by weight is indicated in all the examples).
  - b. The content of boron is defined as a function of the content of rare earths; however, this function has no basis in the description. Conversion according to the formula indicated yields a content of between 0.7264 and 0.997% by weight, 0.7262% by weight being well outside the investigated range (examples). A simpler approach would be to define or to claim a content of between 0.9 and 1.0% by weight, as assumed in this report.
  - c. The same comment applies to the limiting values of the other elements.
  - d. Aluminium is neither cited nor mentioned in the description.
  - e. The content [Dy + Tb + Ho] is not described (only Dy, pages 8 and 9).
  - f. There is no indication that iron comprises the remainder of the alloy composition.



## VIII. Certain observations on the international application

2. Claim 2 is also not supported by the description (see 1.a. and c.).
3. Claims 3 and 4 and the corresponding sections of the description are unclear because they differ only insignificantly from each other:
  - in Claim 3 the content of  $[SE]_{eff}$  is  $>28.9\%$  by weight and that of  $[B]_{eff}$  is thus  $<0.9651\%$  by weight,
  - whereas in Claim 4 the content of  $[SE]_{eff}$  is  $>28.5\%$  by weight and that of  $[B]_{eff}$  is  $<0.9647\%$  by weight. One of the two claims appears to be redundant.
4. The wording used to claim "tempering and cooling" or the tempering temperature in Claim 10 is unclear; although the relevant ranges are shown in Figure 5, they are not supported by the description, contrary to the requirements of PCT Article 6.

It would be clearer (and simpler) to indicate  $T_A$  as a function of rate:

- for  $\Delta T/\Delta t < 5K/min$ ,  $440 \text{ DEG C} < T_A < 560 \text{ DEG C}$  (see the description, page 11, lines 18-20)
- for  $\Delta T/\Delta t > 5K/min$ ,  $470 \text{ DEG C} < T_A < 530 \text{ DEG C}$  (see the description, page 11, lines 25-27).





# PATENT COOPERATION TREATY

WO 01/24203  
PCT/EP00/09128

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

## NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

To:			
WESTPHAL, MUSSGNUG & PARTNER			
Mozartstrasse 8			
80336 München			
ALLEMAGNE			
Westphal · Mussnug & Partner Patentanwälte 80336 München			
Eing.	17. APR. 2001		
First	WV	not.	yes.
			<input checked="" type="checkbox"/>

Date of mailing (day/month/year) 05 April 2001 (05.04.01)		
Applicant's or agent's file reference vac328wo		
<b>IMPORTANT NOTICE</b>		
International application No. PCT/EP00/09128	International filing date (day/month/year) 18 September 2000 (18.09.00)	Priority date (day/month/year) 24 September 1999 (24.09.99)
Applicant VACUUMSCHMELZE GMBH et al		

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:  
US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:  
EP,JP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 05 April 2001 (05.04.01) under No. WO 01/24203

### REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

### REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer  J. Zahra  Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---

